

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

## **IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

As rescanning documents *will not* correct images,  
Please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 07-235378

(43)Date of publication of application : 05.09.1995

(51)Int.Cl. H05B 33/10  
G09F 9/30  
H05B 33/14

(21)Application number : 06-196057 (71)Applicant : CASIO COMPUT CO LTD

(22)Date of filing : 27.07.1994 (72)Inventor : SHIRASAKI TOMOYUKI  
MIYATA SEIZO

(30)Priority

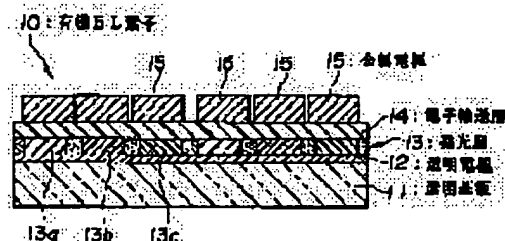
Priority number : 05352520 Priority date : 28.12.1993 Priority country : JP

## (54) ELECTROLUMINESCENT AND ITS MANUFACTURE

(57)Abstract:

**PURPOSE:** To provide a manufacturing method for electroluminescent element which can select a film material to become a dispersing medium without depending upon the physical properties of the desired fluorescent pigment, perform film formation from the selected material, and can select the fluorescent pigment as desired without being restricted by the physical properties of an electric charge conveying film (layer) to become dispersing medium, and also provide an organic electroluminescent element of matrix display type to be yielded by this manufacturing method.

**CONSTITUTION:** A hole conveying layer 16, amphoteric conveyance layer to be provided as applicable, and electron conveying layer 14 are formed one over another on the transparent electrode side of a transparent base board 11 having a transparent electrode 12, and further a back electrode 15 to become an electron implantation type electrode is provided so that an intended electroluminescent element is fabricated. After formation of a layer to become an electron/hole recombination region among the conveying layers, fluorescent pigments R, G, B are applied and spread over the recombination region layer, heated, and dispersed in the recombination region layer so that a light emission layer 13 is formed.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 30.10.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-235378

(43) 公開日 平成7年(1995)9月5日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

H 0 5 B 33/10

G 0 9 F 9/30

H 0 5 B 33/14

識別記号

3 6 5 C 7610-5G

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数7 F D (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願平6-196057

(22) 出願日 平成6年(1994)7月27日

(31) 優先権主張番号 特願平5-352520

(32) 優先日 平5(1993)12月28日

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000001443

カシオ計算機株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目6番1号

(72) 発明者 白 崎 友之

東京都青梅市今井3丁目10番地6 カシオ

計算機株式会社青梅事業所内

(72) 発明者 宮 田 清蔵

東京都保谷市下保谷3丁目18番26号

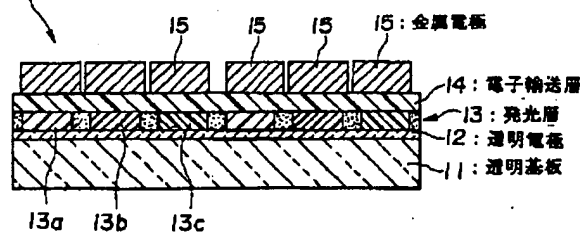
(54) 【発明の名称】 電界発光素子の製造方法および電界発光素子

(57) 【要約】

【目的】 所望の蛍光色素の物性に依存することなく分散媒となる膜材料を選択しさらにこれを成膜でき、かつ分散媒となる電荷輸送膜(層)の物性に制約を受けることなく蛍光色素を任意に選択し得る電界発光素子の製造方法と、この製造方法によって得られるマトリックス表示の有機電界発光素子を提供する。

【構成】 透明電極12を有する透明基板11の透明電極側に、ホール輸送層16と、必要に応じて設けられる両性輸送層と、電子輸送層14とを順次形成し、さらに電子輸送層14上に電子注入型電極となる背面電極15を設ける電界発光素子の製造方法である。各輸送層のうち電子とホールとの再結合領域となる層の形成後、再結合領域層の上に蛍光色素R、G、Bを塗布展開し、次いで蛍光色素を加熱して再結合領域層中に拡散させ、発光層13とする。また、この製造方法によって得られた電界発光素子。

10: 有機EL素子



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 一方の面に透明電極を有する透明基板の透明電極側に、ホール輸送層と、必要に応じて設けられる両性輸送層と、電子輸送層とを順次形成し、さらに該電子輸送層上に電子注入型電極となる背面電極を設ける電界発光素子の製造方法において、前記各輸送層のうち電子とホールとの再結合領域となる層の形成後、該再結合領域層の上に蛍光色素を塗布展開し、次いで該蛍光色素を加熱して前記再結合領域層中に拡散せしめることを特徴とする電界発光素子の製造方法。

【請求項2】 請求項1記載の電界発光素子の製造方法において、前記蛍光色素として異なる発光色を呈する複数種の蛍光色素を用い、これら蛍光色素を相互に分離して前記再結合領域層上に塗布展開し、次いで前記再結合領域層を加熱して前記蛍光色素を同時に前記再結合領域層中に拡散せしめることを特徴とする電界発光素子の製造方法。

【請求項3】 請求項1記載の電界発光素子の製造方法において、前記蛍光色素として異なる発光色を呈する複数種の蛍光色素を用い、これら蛍光色素を各色毎に相互に分離されるよう前記再結合領域層上に塗布展開するとともに、これら蛍光色素を各色毎に前記再結合領域層中に順次拡散せしめることを特徴とする電界発光素子の製造方法。

【請求項4】 透明電極と背面電極とからなるマトリックス電極と、透明電極側に設けられたホール輸送層と、背面電極側に設けられた電子輸送層とを有し、さらに前記ホール電子輸送と電子輸送層との間に両性輸送層を必要に応じて設けてなり、前記各輸送層のうち、電子とホールとの再結合領域となる層が、蛍光色素が拡散せしめられてなる発光層とされたことを特徴とする電界発光素子。

【請求項5】 請求項4記載の電界発光素子において、前記発光層が、異なる発光色を呈する複数種の蛍光色素がそれぞれ独立した領域に拡散せしめられて形成され、かつこれら独立した領域が、それぞれ前記マトリックス電極の各交差位置に対応して配置されてなることを特徴とする電界発光素子。

【請求項6】 上記再結合領域となる層として高分子ゲルを用いたことを特徴とする請求項4または請求項5に記載の電界発光素子。

【請求項7】 上記再結合領域となる層として多孔質シリコンを用いたことを特徴とする請求項4または請求項5に記載の電界発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、有機薄膜材料を用いた電荷注入型の電界発光素子の製造方法と、この製造方法によって得られた電界発光素子に関する。

## 【0002】

【従来の技術】近年、表示装置の発光表示部や面光源等への利用が期待され一部に実施されている電界発光素子として、エレクトロルミネッセンス素子（EL素子）がある。このようなEL素子としては、特に有機薄膜材料を用いたものとして例えば図10に示す構造のものが知られている。

【0003】図10において符号1は有機EL素子であり、この有機EL素子1は、透明基板2上にITO（Indium Tin Oxide）等からなる透明電極3が形成され、該透明電極3上に薄膜状の発光層4が形成され、該発光層4上に薄膜状の電子輸送層5が形成され、さらにその上に電子注入電極として機能する背面電極6が形成されたものである。

【0004】発光層4はホール輸送層として機能するので、その内部に予め発光体色素（蛍光色素）が分散せしめられて発光をなすものであり、電場印加により背面電極6から注入された電子と透明電極3から注入されたホールとが主にここで再結合し、これによって励起子が生成し、さらに該励起子が移動して発光体色素がその種類に応じた色に発光するものである。

【0005】なお、このように電子とホールとが再結合する領域を以後再結合領域層と称する。

【0006】このような有機EL素子1を製造するにあたり、特に発光層4を形成するには、分散媒膜構成材料と分散質色素とを共通溶媒中に溶解し、この溶液をディップコートやスピンコートなどの湿式法によって透明電極3上に塗布し、その後乾燥して分散質色素（蛍光色素）を分散した分散媒膜（ホール輸送膜）を得ている。そして、このようにして得られた有機EL素子1にあっては、

（1）任意の蛍光色素を分散させることができることにより、発光波長を任意に設定することができる。

【0007】（2）共通溶媒を用いているため、膜形成性の低い材料でも発光層形成用の膜材料として適用可能になる。

【0008】（3）分散膜にポリマー等結晶性の低いものを採用した場合の、発光材料の結晶化に起因する欠陥発生を防止し、これにより欠陥発生によって生じる寿命低下の問題を解決することができる。

【0009】等の利点があるとされている。

【0010】また、このような有機EL素子1にあっては、無機EL素子に比べ原理的に青色発光が容易であることから、開発当初よりRGB個別発光素子への応用が期待されている。

## 【0011】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、図10に示した有機EL素子では、その製造に際して発光層の形成をディップコートやスピンコートなどの湿式法で行っているため、共通溶媒の選定が発光層形成（成膜）においてより重要となるが、有機EL素子においては通常

電子輸送層、ホール輸送層、さらには必要に応じこれらの間に形成される両性輸送層からなる電荷輸送層を数百～数千Åの薄膜にしなければならないため、実際には湿式法による成膜条件を満たす共通溶媒を用いた場合には、必ずしも分散媒膜となる材料に対して最適な成膜条件を設定することができず、したがってその製造が困難であるといった不都合がある。

【0012】また、前記有機EL素子では、これまでRGB（赤緑青）個別発光素子としての多くの報告がなされていたにも関わらず、現在に至ってもマルチカラーおよびフルカラーのマトリックス表示素子としての有機EL素子の報告はない。これは、RGBそれぞれの画素を構成する有機薄膜を、例えばリソグラフィ、スクリーン印刷等の技術で同一基板上に画素パターンとしてマトリックス形成することが困難であることが主な原因であると考えられている。

【0013】本発明は前記事情に鑑みてなされたもので、その第一の目的は、所望の分散色素（蛍光色素）の物性に依存することなく分散媒（分散層）となる膜材料を選択しさらにこれを成膜でき、かつ分散媒となる電荷輸送膜（電荷輸送層）の物性に制約を受けることなく蛍光色素を任意に選択し得る電界発光素子の製造方法と、この製造方法によって得られるマトリックス表示の電界発光素子を提供することにある。また、本発明の第二の目的は、RGB等の複数の発光色を有するマルチカラーまたはフルカラーの電界発光素子の製造方法と、この製造方法によって得られるマトリックス表示の電界発光素子を提供することにある。

【0014】

【課題を解決するための手段】本発明における請求項1記載の電界発光素子の製造方法では、一方の面に透明電極を有する透明基板の透明電極側に、ホール輸送層と、必要に応じて設けられる両性輸送層と、電子輸送層とを順次形成し、さらに該電子輸送層上に電子注入型電極となる背面電極を設ける電界発光素子の製造方法において、前記各輸送層のうち電子とホールとの再結合領域となる層の形成後、該再結合領域層の上に蛍光色素を塗布展開し、次いで該蛍光色素を加熱して前記再結合領域層中に拡散せしめることを前記課題の解決手段とした。

【0015】請求項2記載の電界発光素子の製造方法では、前記蛍光色素として異なる発光色を呈する複数種の蛍光色素を用い、これら蛍光色素を相互に分離して前記再結合領域層上に塗布展開し、次いで前記再結合領域層を加熱して前記蛍光色素を同時に前記再結合領域層中に拡散せしめることを前記課題の解決手段とした。

【0016】請求項3記載の電界発光素子の製造方法では、前記蛍光色素として異なる発光色を呈する複数種の蛍光色素を用い、これら蛍光色素を各色毎に相互に分離されるよう前記再結合領域層上に塗布展開するとともに、これら蛍光色素を各色毎に前記再結合領域層中に順

次拡散せしめることを前記課題の解決手段とした。

【0017】請求項4記載の電界発光素子では、透明電極と背面電極とからなるマトリックス電極と、透明電極側に設けられたホール輸送層と、背面電極側に設けられた電子輸送層とを有し、さらに前記ホール電子輸送と電子輸送層との間に両性輸送層を必要に応じて設けてなり、前記各輸送層のうち、電子とホールとの再結合領域となる層が、蛍光色素が拡散せしめられてなる発光層とされたことを前記課題の解決手段とした。

【0018】請求項5記載の電界発光素子では、前記発光層が、異なる発光色を呈する複数種の蛍光色素がそれぞれ独立した領域に拡散せしめられて形成され、かつこれら独立した領域が、それぞれ前記マトリックス電極の各交差位置に対応して配置されてなることを前記課題の解決手段とした。請求項6記載の電界発光素子では、上記再結合領域となる層として高分子ゲルを用いたことを前記課題の解決手段とした。請求項7記載の電界発光素子では、上記再結合領域となる層として多孔質シリコンを用いたことを前記課題の解決手段とした。

【0019】

【作用】請求項1記載の電界発光素子によれば、ホール輸送層、必要に応じて設けられる両性輸送層、電子輸送層のうち電子とホールとの再結合領域となる層の形成後、該再結合領域層の上に蛍光色素を塗布展開し、次いで該蛍光色素を加熱して前記再結合領域層中に拡散せしめるので、再結合領域層の形成に際し、該層を先に独立して形成することから、その形成材料を蛍光色素の物性に制約されることなく選択することができる。また、蛍光色素についても、再結合領域層形成後に該層中に拡散せしめることから、再結合領域層の形成材料の物性に制約されることなく任意のものを選択することができる。

【0020】請求項2および3記載の電界発光素子の製造方法によれば、前記蛍光色素として異なる発光色を呈する複数種の蛍光色素を用いているので、蛍光色素の発光色に応じた複数色の発光をなす電界発光素子の製造が可能になる。

【0021】請求項4記載の電界発光素子では、電子とホールとの再結合領域となる層が、蛍光色素が拡散せしめられてなる発光層とされているので、該発光層の形成に際してリソグラフィ、スクリーン印刷等のパターン加工が不要になる。

【0022】請求項5記載の電界発光素子では、発光層が、異なる発光色を呈する複数種の蛍光色素がそれぞれ独立した領域に拡散せしめられて形成され、かつこれら独立した領域が、それぞれ前記マトリックス電極の各交差位置に対応して配置されてなるので、マトリックス電極の駆動により複数色による表示が可能になる。請求項6記載の電界発光素子では、再結合領域となる層、すなわち発光層が高分子ゲルとされており、高分子ゲルにおいては、蛍光色素の拡散が容易となる。また、高分子ゲ

10

20

30

40

50

ルにおいては、蛍光色素以外の材料の拡散も容易であり、電荷輸送性の向上や、ホールもしくは電子注入障壁の低減などを目的としたドーパントの導入も容易となる。請求項7記載の電界発光素子では、再結合領域となる層、すなわち発光層が多孔質シリコンとされており、多孔質シリコン膜は、その形成に際し、厚み及び電子物性を均一にすることが可能であり、電界発光素子における輝度の均一化を図ることができる。

【0023】

【実施例】以下、本発明を詳しく説明する。

【0024】図1および図2は本発明における請求項5記載の電界発光素子をカラーマトリックス表示用の有機EL素子に適用した場合の一実施例を示す図であり、これらの図において符号10は有機EL素子である。

【0025】この有機EL素子10は、透明基板11上にITO等からなる透明電極12…をストライプ状に形成し、これら透明電極12…上に発光層13…をドット状に形成し、該発光層13の上に電子輸送層14を形成し、さらにその上にストライプ状の金属電極15…を前記透明電極12…と直交するようにして形成したものである。なお、透明電極12…と金属電極15…とは、互いに直交して形成配置されていることによってマトリックス電極を構成するものとなっている。

【0026】ここで、発光層13…は、例えばポリNビニルカルバゾール(PVCz)等をホール輸送層として機能する分散媒膜(分散媒層)とし、後述するようにこの分散媒膜中に蛍光色素(分散色素)を拡散により分散させたものである。また、この例では、図1および図3に示すように発光層13中に異なる色、具体的には赤、緑、青の三種の発光色をそれぞれ呈する蛍光色素が分散(拡散)せしめられ、これにより赤色発光部13a、緑色発光部13b、青色発光部13cが相互に分離し、すなわちそれぞれ独立して発光層13中に形成されている。なお、蛍光色素としては、クマリン系(緑〜黄色)、ペリレン系(赤色)、オキサゾール系(緑〜黄色)、オキサジン系、ナフタレン系(青色)、キノロン系等のものが適宜選択され用いられている。

【0027】また、電子輸送層14は、例えばアルミオキシ錯体等からなるものである。なお、上記発光層(ホール輸送層)13…、電子輸送層14、または両性輸送層としては、上述以外の導電性高分子化合物を用いることもできる。例えば、上記発光層13…、すなわち、上記再結合領域層としては、高分子ゲルを用いることができる。すなわち、高分子ゲルをホール輸送層として機能する分散媒膜(分散媒層)とすることができ、この場合前者(PVCz等)に比較し色素の分散が容易となる。さらに、この場合は色素以外の材料拡散もまた容易になるため、ホール輸送性の向上、アノードからのホール注入障壁の低減などを目的としたドーパントの導入も容易となる。従って、積極的な薄膜特性の改善が可能とな

る。また、上記発光層13…、すなわち、上記再結合領域層としては、例えば多孔質シリコンを用いることができる。すなわち、多孔質シリコンをホール輸送層として機能する分散媒層とすることができる。この多孔質シリコン層は、例えばITO電極上にCVD(chemical vapor deposition)法等によって堆積されたポリシリコン膜を陽極酸化により多孔質化したものである。この多孔質シリコン層は、ドライプロセスにより厚み、電子物性に均一な膜として得ることができるため、輝度の均一化を実現することができる。

【0028】また、金属電極15…は背面電極となるもので、In、Mg、Ca等の仕事関数の低い、すなわち電子注入性の高い金属から形成されたものである。このような金属から金属電極15…を形成することにより、各電極(透明電極12…、金属電極15…)からのキャリア(ホール、電子)の注入および発光層13…内での再結合が効率よく行われ、結果として得られた電界発光素子10は発光性能の高いものとなる。

【0029】なお、前記発光層13…における各発光部13a、13b、13cは、それぞれ前記透明電極12…と金属電極15…とからなるマトリックス電極の各交差位置に対応して配置されたものとなっている。

【0030】このような有機EL素子10にあつては、金属電極15から注入される電子が電子輸送層14を通過して発光層13…内に至り、一方透明電極12から注入されるホールがホール輸送層としても機能する発光層13…内に至り、該発光層13内で電子とホールとが再結合することにより、蛍光色素の種類に応じた色に発光する。

【0031】ここで、この有機EL素子10においてそのホール輸送層が発光層となり得るための機構、すなわち電子輸送層(ETL)、ホール輸送層(HTL)〔発光層〕となり得る薄膜材料の電子物性について図4を利用して説明する。図4はイオン化ポテンシャル及び電子親和力の絶対値をそれぞれ $I_p$ 、 $E_a$ とし、仕事関数( $W_f$ )の概念、すなわち電子を各薄膜層におけるクーロン力の束縛から無限遠に引き離すときの仕事量の形で表現したキャリアのエネルギーダイヤグラムである。なお、電子のポテンシャルはより $W_f$ の大きな個体内部で小さくなり、これに対してホールのポテンシャルはより $W_f$ の小さな個体内部で小さくなる。

【0032】電子注入については、カソード(金属電極15) $W_f$ とETL  $E_a$ 間の大きさをもったエネルギー障壁が存在するものの、この障壁は外部電界に対して十分に小さいことから、電子注入は容易に行われる。そして、ETL内に注入された電子は、外部電界によりHTLとの界面まで移動する。また、ETLからHTLへの電子の移動は、より電子のポテンシャルが小さくなる方向にあるのでむしろ自発的に進行する。

【0033】一方、ホール注入については、アノード

(透明電極12) WfとHTL I p間の大きさをもったエネルギー障壁が存在するものの、この障壁も外部電界に対し十分に小さいことから、ホール注入は容易に行われる。そして、HTL内に注入されたホールは、外部電界によりETLとの界面まで移動する。また、HTLからETLへのホールの注入は、ETL I pとHTL I p間のエネルギー障壁が外部電界に対し非常に大きいので困難になる。

【0034】このため、アノードから注入されたホールはHTLに閉じ込められ、これに対して電子はETLからHTLに流れ込み、したがってホールと電子の再結合はETL、HTL界面のHTL側で生じる。このとき、HTLが単一の物質であれば再結合によって生じた励起子のエネルギーはHTL自身に遷移するが、より蛍光波長が長く、かつ、あるいは、蛍光収率の大きな色素がこの再結合部位に共存している場合には、エネルギー遷移がその蛍光色素分子に対して選択的に行われ、薄膜素子は蛍光色素分子の蛍光に起因した発光をなす。

【0035】なお、図4ではホール輸送層(HTL)が再結合領域層となり、したがってこの層中に蛍光色素が共存せしめられることによって該層が発光層として機能する例を示したが、電子輸送層(ETL)、ホール輸送層(HTL)を形成する薄膜材料の選択によっては電子輸送層を再結合領域層とし、したがってこの層を発光層とすることも可能であり、さらに電子輸送層(ETL)とホール輸送層(HTL)との間に両性輸送層を設けてこの層を再結合領域層とし、これにより該両性輸送層が発光層とすることも可能である。

【0036】次に、このような有機EL発光素子10の製造方法について説明する。

【0037】まず、蒸着法やスパッタ法等によって予めITO等の透明電極膜を形成した透明基板11を用意し、透明電極膜をエッチング等によりストライプ状にパターン化して図5(a)、(b)に示すように透明基板11上に透明電極12…を形成する。

【0038】次に、ポリNビニルカルバゾール(PVCz)等のホール輸送層を形成する材料を、図6(a)、(b)に示すようにスピンコートやディッピングコート等の湿式法、あるいは蒸着法等により前記透明電極12…上に成膜してホール輸送層16を形成する。ここで、該ホール輸送層16を形成する材料の成膜については、図2に示した金属電極15…のうちの各3本ずつと透明電極12…のうちの各1本との交差部を一つの単位(画素)とし、これら単位毎に成膜することによって全体がドット状となるように行う。なお、図5(a)、

(b)、図6(a)、(b)および後記する図7

(a)、(b)～図10(a)、(b)については、前記単位(画素)についてのみの平面図および側断面図を示したものである。

【0039】次に、このようにして形成されたホール輸

送層16の上に、図7(a)、(b)に示すように赤色の発光を呈する蛍光色素R、緑色の発光を呈する蛍光色素G、青色の発光を呈する蛍光色素Bを、スクリーン印刷法あるいはインクジェット法等によりそれぞれ相互に分離されるようにして塗布展開する。

【0040】次いで、図8(a)、(b)に示すように、赤外線ランプ17を用いて前記蛍光色素R、G、Bを展開した側に赤外線を照射し、該蛍光色素R、G、Bおよびホール輸送層16を加熱することにより、該蛍光色素R、G、Bをホール輸送層16内に拡散せしめることによって赤色発光部13a、緑色発光部13b、青色発光部13cを形成すると同時に、発光層13を形成する。

【0041】なお、蛍光色素の加熱拡散については、該蛍光色素を展開した側からでなく、透明基板11側から加熱してもよく、また、その場合に赤外線加熱でなくホットプレート等のヒータを用いて、熱伝導により加熱してもよい。このように透明基板11側から加熱すると、蛍光色素の展開面は透明基板11より温度が低くなるため、用いた蛍光色素が昇華性の高い場合に、昇華に起因した色素ロスを低減することができる。

【0042】また、蛍光色素R、G、Bの展開については、固体状のままでも展開してもよく、適宜な溶媒に溶解させて溶液状で展開させてもよい。

【0043】次いで、アルミオキシ錯体等の電子輸送層を形成する材料を、図9(a)、(b)に示すように蒸着法等によって発光層13の上に成膜し、電子輸送層13を形成する。

【0044】その後、透明電極12…と直交し、かつ発光層13の各赤色発光部13a…、緑色発光部13b…、青色発光部13c…のそれぞれに対応させてこれらの直上にスパッタ法等で金属電極15…を形成し、図1、図2に示した有機EL素子10を得る。

【0045】このような製造方法にあつては、再結合領域層となるホール輸送層16を先に形成した後、その上に蛍光色素R、G、Bを展開し、さらにこれを加熱してホール輸送層16中に拡散し、発光層13を形成するので、ホール輸送層16を形成する材料を蛍光色素R、G、Bの物性に制約されることなく選択することができ、また、蛍光色素R、G、Bについても、ホール輸送層(再結合領域層)16形成後に該層中に拡散せしめることから、ホール輸送層16の形成材料の物性に制約を受けることなく任意のものを選択することができる。

【0046】また、このようにして得られた有機EL素子にあつては、発光層13の形成にリソグラフィー、スクリーン印刷等のパターン加工が用いられていないため、その製造が容易になり、したがって歩留まりが高まるとともに製造コストも低減化されたものとなる。

【0047】また、発光層13が、それぞれ独立した領域に拡散せしめられて形成された赤色発光部13a、緑



色発光部13b、青色発光部13cを有し、これら各発光部がそれぞれ透明電極12…と金属電極15…との交差位置に対応して配置されているので、これら透明電極12…と金属電極15…（マトリックス電極）の駆動によりフルカラー表示が可能になる。

【0048】なお、前記実施例では、蛍光色素R、G、Bをそれぞれ塗布展開した後、これら蛍光色素R、G、Bを同時に加熱し拡散せしめた場合で説明したが、本発明はこの方法に限られるものではない。例えば、蛍光色素Rのみを塗布展開してこれを乾燥し、次いで蛍光色素Gを塗布展開してこれを乾燥し、その後蛍光色素Bを塗布展開してこれを乾燥した上、上述した加熱によりRG Bの各蛍光色素を同時に再結合領域層中に拡散してもよい。また、蛍光色素Rを塗布展開してこれを加熱拡散し、次いで蛍光色素Gを塗布展開してこれを加熱拡散し、その後蛍光色素Bを塗布展開してこれを加熱拡散するといったように、各蛍光色素毎に塗布展開および加熱拡散の工程を繰り返すようにしてもよい。

【0049】また、蛍光色素として赤、緑、青の発光をなす三種のものをを用い、それぞれの発光部を発光層13に形成したが、いずれか一種あるいは二種の蛍光色素のみを用いてもよく、さらには前記の色以外の色に発光する蛍光色素を用いてもよい。また、前記実施例では発光層13をドット状に形成したが、各発光部13a、13b、13cをストライプ状に形成したり、あるいは発光層13全体を複数のストライプ状に形成してもよい。

【0050】さらに、前記実施例ではホール輸送層16が再結合領域となるようにして該ホール輸送層中に蛍光色素を拡散させ、発光層13としたが、前述したごとく電子輸送層、ホール輸送層を形成する薄膜材料の選択によっては電子輸送層を再結合領域層とし、したがってこの層を発光層とすることもでき、さらに電子輸送層とホール輸送層との間に両性輸送層を設けてこの層を再結合領域層とし、これにより該両性輸送層を発光層とすることもできる。

【0051】

【発明の効果】以上説明したように本発明における請求項1記載の電界発光素子の製造方法は、再結合領域層となる層の形成後、該再結合領域層の上に蛍光色素を塗布展開し、次いで該蛍光色素を加熱して前記再結合領域層中に拡散せしめるものであるから、再結合領域層の形成に際し、該層を先に独立して形成することによりその形成材料を蛍光色素の物性に制約されることなく選択することができる。また、蛍光色素についても、再結合領域層形成後に該層中に拡散せしめることから、再結合領域層の形成材料の物性に制約されることなく任意のものを選択することができる。したがって、材料選択上の自由度が高まることによってその製造条件が緩和され、これにより生産性を高めることができる。

【0052】請求項2および3記載の電界発光素子の製

造方法は、前記蛍光色素として異なる発光色を呈する複数種の蛍光色素を用いるものであるから、蛍光色素の発光色に応じた複数色の発光をなす電界発光素子を製造することができる。

【0053】請求項4記載の電界発光素子は、電子とホールとの再結合領域となる層が、蛍光色素が拡散せしめられてなる発光層とされたものであるから、該発光層の形成に際してリソグラフィ、スクリーン印刷等のパターン加工が不要になるためその製造が容易になり、したがって歩留まりが高まるとともに製造コストも低減化されたものとなる。

【0054】請求項5記載の電界発光素子は、発光層が、異なる発光色を呈する複数種の蛍光色素がそれぞれ独立した領域に拡散せしめられて形成され、かつこれら独立した領域が、それぞれ前記マトリックス電極の各交差位置に対応して配置されたものであるから、マトリックス電極の駆動により複数色による表示を行うことができる。

【0055】請求項6記載の電界発光素子は、発光層となる再結合領域層を高分子ゲルとしたことにより、蛍光色素の分散を容易なものとすることができる。さらに、高分子ゲルは、色素以外の材料拡散もまた容易になるため、ホール輸送性の向上、アノードからのホール注入障壁の低減などを目的としたドーパントの導入も容易となる。従って、ドーパントの導入による積極的な薄膜特性の改善が可能となる。

【0056】請求項7記載の電界発光素子は、発光層となる再結合領域層が多孔質シリコンとされており、多孔質シリコン膜は、例えば、ITO電極上にCVD法等によって堆積されたポリシリコン膜を陽極酸化により多孔質化したものであり、そのドライプロセスにより厚み及び電子物性が均質な膜として得ることが可能である。従って、発光層として多孔質シリコンを用いることにより輝度の均一化を実現することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の電界発光素子を有機EL素子に適用した場合の一実施例を示す要部断面図。

【図2】図1に示した有機EL素子の平面図。

【図3】発光層の平面図。

【図4】キャリアのエネルギーダイアグラムを示す図。

【図5】図1に示した有機EL素子の製造方法を説明するための図であり、(a)は要部平面図、(b)は要部側断面図。

【図6】図5に示した次の工程を説明するための図であり、(a)は要部平面図、(b)は要部側断面図。

【図7】図6に示した次の工程を説明するための図であり、(a)は要部平面図、(b)は要部側断面図。

【図8】図7に示した次の工程を説明するための図であり、(a)は要部平面図、(b)は要部側断面図。

【図9】図8に示した次の工程を説明するための図であ

11

り、(a)は要部平面図、(b)は要部側断面図。

【図10】従来の電解発光素子の一例を示す要部斜視図。

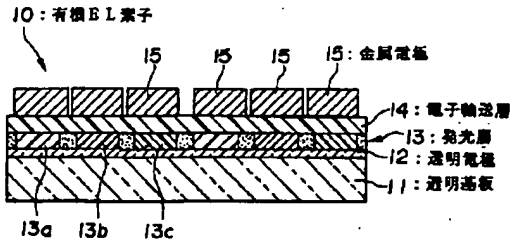
【符号の説明】

10. 有機EL素子（電界発光素子）  
 11 透明基板  
 12 透明電極  
 13 発光層

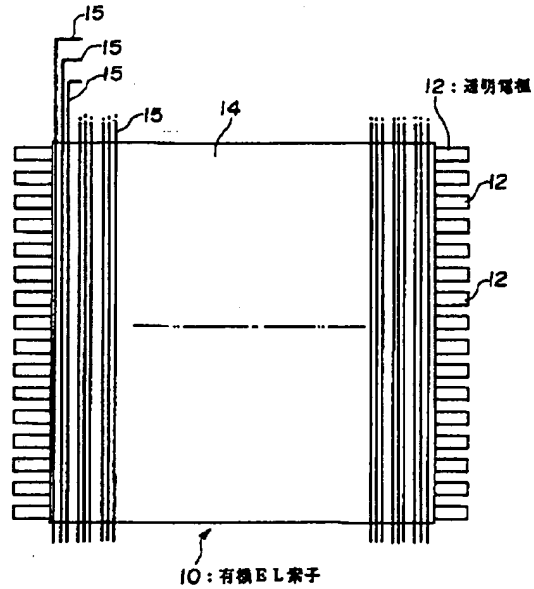
12

- 13a 赤色発光部  
 13b 緑色発光部  
 13c 青色発光部  
 14 電子輸送層  
 15 金属電極（背面電極）  
 16 ホール輸送層  
 17 赤外線ランプ  
 R、G、B 蛍光色素

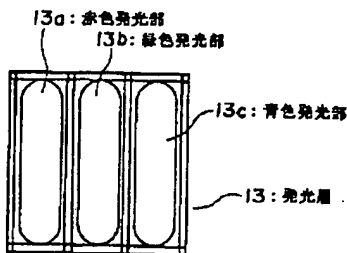
【図1】



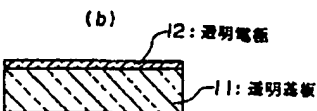
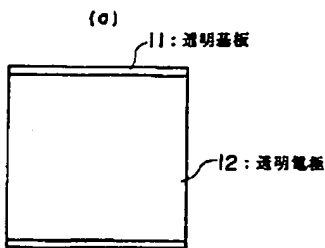
【図2】



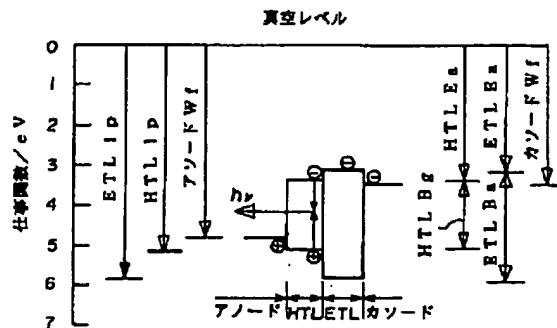
【図3】



【図5】

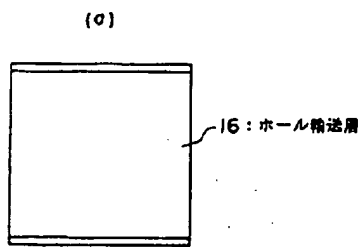


【図4】

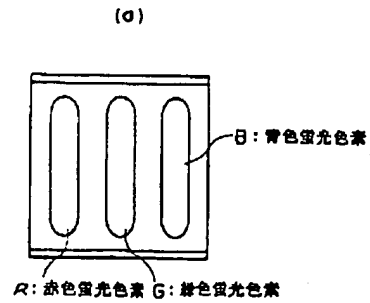


Wf:仕事関数、Ip:イオン化ポテンシャル、  
 Ea:電子親和力、Bg:バンドギャップ、t:膜厚  
 HTL:ホール輸送層、ETL:電子輸送層

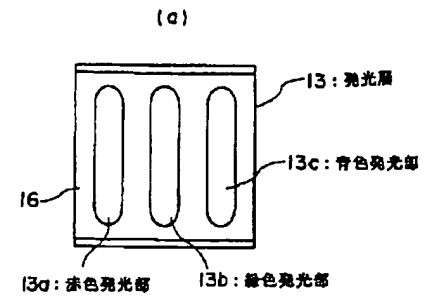
【図6】



【図7】



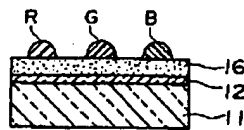
【図8】



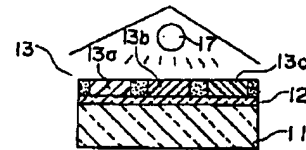
(b)



(b)

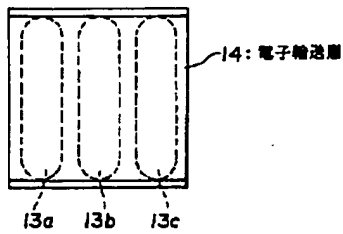


(b)

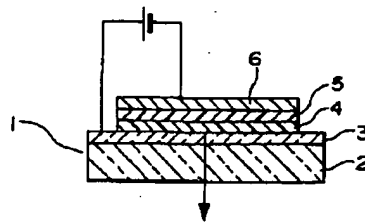


【図9】

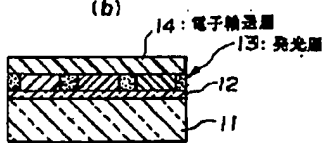
(a)



【図10】



(b)



## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 07-235378

(43)Date of publication of application : 05.09.1995

(51)Int.Cl.

H05B 33/10

G09F 9/30

H05B 33/14

(21)Application number : 06-196057

(71)Applicant : CASIO COMPUT CO LTD

(22)Date of filing : 27.07.1994

(72)Inventor : SHIRASAKI TOMOYUKI

MIYATA SEIZO

(30)Priority

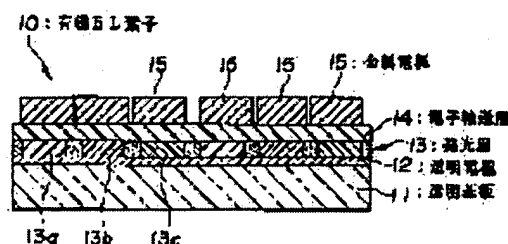
Priority number : 05352520 Priority date : 28.12.1993 Priority country : JP

## (54) ELECTROLUMINESCENT AND ITS MANUFACTURE

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide a manufacturing method for electroluminescent element which can select a film material to become a dispersing medium without depending upon the physical properties of the desired fluorescent pigment, perform film formation from the selected material, and can select the fluorescent pigment as desired without being restricted by the physical properties of an electric charge conveying film (layer) to become dispersing medium, and also provide an organic electroluminescent element of matrix display type to be yielded by this manufacturing method.

CONSTITUTION: A hole conveying layer 16, amphoteric conveyance layer to be provided as applicable, and electron conveying layer 14 are formed one over another on the transparent electrode side of a transparent base board 11 having a transparent electrode 12, and further a back electrode 15 to become an electron implantation type electrode is provided so that an intended electroluminescent element is fabricated. After formation of a layer to become an electron/hole recombination region among the conveying layers, fluorescent pigments R, G, B are applied and spread over the recombination region layer, heated, and dispersed in the recombination region layer so that a light emission layer 13 is formed.



## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

## CLAIMS

---

### [Claim(s)]

[Claim 1] To the transparent-electrode side of the transparent substrate which has a transparent electrode in one field, it is a hole transporting bed. The amphoteric transporting bed prepared if needed. The back plate which forms an electronic transporting bed one by one, and turns into an electron-injection type electrode on this electronic transporting bed further. It is the manufacture method of electroluminescence devices equipped with the above, and application expansion of the fluorochrome is carried out on this recombination field layer after formation of the layer which serves as a recombination field of an electron and a hole among each aforementioned transporting bed, and it is characterized by heating this fluorochrome subsequently and making it spread in the aforementioned recombination field layer.

[Claim 2] The manufacture method of the electroluminescence devices which separate these fluorochromes mutually, carry out application expansion on the aforementioned recombination field layer using two or more sorts of fluorochromes which present the different luminescent color as the aforementioned fluorochrome in the manufacture method of electroluminescence devices according to claim 1, and are characterized by heating the aforementioned recombination field layer subsequently and making the aforementioned fluorochrome diffuse in the aforementioned recombination field layer simultaneously.

[Claim 3] The manufacture method of the electroluminescence devices characterized by making these fluorochromes diffuse one by one in the aforementioned recombination field layer for every color while carrying out application expansion on the aforementioned recombination field layer using two or more sorts of fluorochromes which present the different luminescent color as the aforementioned fluorochrome in the manufacture method of electroluminescence devices according to claim 1 so that these fluorochromes may be mutually separated for every color.

[Claim 4] Electroluminescence devices characterized by making the layer which is equipped with the following, comes to prepare an amphoteric transporting bed between the aforementioned hole electronic transportation and an electronic transporting bed if needed further, and serves as a recombination field of an electron and a hole among each aforementioned transporting bed into the luminous layer a fluorochrome is made to come to spread. The matrix electrode which consists of a transparent electrode and a back plate. The hole transporting bed prepared in the transparent-electrode side. The electronic transporting bed prepared in the back plate side.

[Claim 5] Electroluminescence devices to which it is made to be spread by the field to which two or more sorts of fluorochromes which the aforementioned luminous layer presents the different luminescent color in electroluminescence devices according to claim 4 became independent, respectively, and is formed, and the field which these-became independent is arranged corresponding to each intersection position of the aforementioned matrix electrode, respectively, and is characterized by the bird clapper.

[Claim 6] Electroluminescence devices according to claim 4 or 5 characterized by using macromolecule gel as a layer used as the above-mentioned recombination field.

[Claim 7] Electroluminescence devices according to claim 4 or 5 characterized by using porosity silicon as a layer used as the above-mentioned recombination field.

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

## [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] this invention relates to the electroluminescence devices obtained by the manufacture method of the charge pouring type electroluminescence devices which used the organic thin film material, and this manufacture method.

[0002]

[Description of the Prior Art] In recent years, there is an electro RUMINNE sense element (EL element) as electroluminescence devices which the use to a luminescence display, the surface light source, etc. of display is expected, and are carried out in part. The thing of the structure shown in drawing 10 as a thing using the organic thin film material especially as such an EL element is known.

[0003] In drawing 10, a sign 1 is an organic EL element, the transparent electrode 3 which consists of ITO (Indium Tin Oxide) etc. is formed on the transparent substrate 2, the thin film-like luminous layer 4 is formed on this transparent electrode 3, on this luminous layer 4, the electronic thin film-like transporting bed 5 is formed and, as for this organic EL element 1, the back plate 6 which functions as an electron-injection electrode on it is formed further.

[0004] Light is emitted in the color [ coloring matter / emitter ] the hole poured in from the electron which a luminous layer 4 functions as a hole transporting bed, and emitter coloring matter (fluorochrome) was made to distribute beforehand by the interior, emits light, and was poured in by electric-field impression from the back plate 6, and the transparent electrode 3 mainly recombines here, an exciton generates by this, and this exciton moves further, and corresponding to the kind.

[0005] In addition, the field which an electron and a hole recombine in this way is henceforth called a recombination field layer.

[0006] In order are in charge of manufacturing such organic EL element 1, especially to form a luminous layer 4, the dispersion-medium film (hole transportation film) which dissolved a dispersion-medium film component and dispersoid coloring matter into the common solvent, applied this solution on the transparent electrode 3 with wet methods, such as a DIP coat and a spin coat, dried after that, and distributed dispersoid coloring matter (fluorochrome) has been obtained. And if it is in organic EL element 1 obtained by doing in this way, luminescence wavelength can be arbitrarily set up by the ability distributing the fluorochrome of (1) arbitration.

[0007] (2) Since the common solvent is used, application also of a low material of film formation nature is attained as a film material for luminous layer formation.

[0008] (3) Defective generating resulting from crystallization of luminescent material at the time of adopting crystalline low things, such as polymer, as a distributed film can be prevented, and the problem of the life fall which this produces by defective generating can be solved.

[0009] It is supposed that there is an advantage of \*\*.

[0010] Moreover, if it is in such an organic EL element, since blue luminescence is theoretically easy compared with an inorganic EL element, the application to a RGB individual light emitting device is expected from the time of development.

[0011]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] However, since the luminous layer is formed with wet methods, such as a DIP coat and a spin coat, on the occasion of the manufacture, although selection of a common solvent becomes more important in luminous layer formation (membrane formation) in the organic EL element shown in drawing 10 In order to have to make into the thin film of hundreds - 1000A of numbers the charge transporting bed which usually consists of an electronic transporting bed, a hole transporting bed, and an amphoteric transporting bed further formed among

these if needed in an organic EL element, When the common solvent which fulfills the membrane formation conditions by the wet method in fact is used, the optimal membrane formation conditions cannot necessarily be set up to the material used as a dispersion-medium film, therefore there is un-arranging [ that the manufacture is difficult ].

[0012] Moreover, at the aforementioned organic EL element, in spite of having made the report as [ many of ] a RGB (red copper rust) individual light emitting device until now, even if it continues till present, there is no report of the organic EL element as multicolor and a full color matrix display device. It is thought that this is the causes with main it being difficult to carry out matrix formation of the organic thin film which constitutes the pixel of each RGB as a pixel pattern on the same substrate with technology, such as lithography and screen-stencil.

[0013] this invention is what was made in view of the aforementioned situation. the first purpose The film material which serves as a dispersion medium (dispersion layer), without being dependent on the physical properties of desired distributed coloring matter (fluorochrome) is chosen, and this can be formed further. And it is in offering the electroluminescence devices of the matrix display obtained by the manufacture method of the electroluminescence devices which can choose a fluorochrome arbitrarily, and this manufacture method, without receiving restrictions in the physical properties of the charge transportation film (charge transporting bed) used as a dispersion medium. Moreover, the second purpose of this invention is to offer the electroluminescence devices of the matrix display obtained by the manufacture method of of the multicolor or the full color electroluminescence devices which has two or more luminescent color, such as RGB, and this manufacture method.

[0014]  
[Means for Solving the Problem] By the manufacture method of the electroluminescence devices according to claim 1 in this invention To the transparent-electrode side of the transparent substrate which has a transparent electrode in one field, a hole transporting bed, In the manufacture method of the electroluminescence devices which form the amphoteric transporting bed prepared if needed and an electronic transporting bed one by one, and prepare the back plate used as an electron-injection type electrode on this electronic transporting bed further Application expansion of the fluorochrome was carried out on this recombination field layer after formation of the layer which serves as a recombination field of an electron and a hole among each aforementioned transporting bed, and it made to heat this fluorochrome subsequently and to make it spread in the aforementioned recombination field layer into the solution means of the aforementioned technical problem.

[0015] Using two or more sorts of fluorochromes which present the different luminescent color as the aforementioned fluorochrome by the manufacture method of electroluminescence devices according to claim 2, these fluorochromes were separated mutually, application expansion was carried out on the aforementioned recombination field layer, and it carried out heating the aforementioned recombination field layer subsequently and making the aforementioned fluorochrome diffuse in the aforementioned recombination field layer simultaneously as the solution means of the aforementioned technical problem.

[0016] By the manufacture method of electroluminescence devices according to claim 3, while carrying out application expansion on the aforementioned recombination field layer using two or more sorts of fluorochromes which present the different luminescent color as the aforementioned fluorochrome so that these fluorochromes might be mutually separated for every color, it made to make these fluorochromes diffuse one by one in the aforementioned recombination field layer for every color into the solution means of the aforementioned technical problem.

[0017] The matrix electrode which consists of a transparent electrode and a back plate in electroluminescence devices according to claim 4, It has the hole transporting bed prepared in the transparent-electrode side, and the electronic transporting bed prepared in the back plate side. The layer which furthermore comes to prepare an amphoteric transporting bed between the aforementioned hole electronic transportation and an electronic transporting bed if needed, and serves as a recombination field of an electron and a hole among each aforementioned transporting bed made it the solution means of the aforementioned technical problem to have considered as the luminous layer a fluorochrome is made to come to spread.

[0018] In electroluminescence devices according to claim 5, it was made to be spread by the field to which two or more sorts of fluorochromes which the aforementioned luminous layer presents the different luminescent color became independent, respectively, and was formed, and the field which these-became independent has been arranged corresponding to each intersection position of the aforementioned matrix electrode, respectively, and made the bird clapper the solution means of the aforementioned technical problem. In electroluminescence devices according to claim 6, it made to have used macromolecule gel as a layer used as the above-mentioned recombination field into the solution means of the aforementioned technical problem. In electroluminescence devices according to claim 7, it made to have used porosity silicon as a layer used as the above-mentioned recombination field into the solution means of the aforementioned technical problem.

[0019]

[Function] The amphoteric transporting bed which is prepared a hole transporting bed and if needed according to the electroluminescence devices according to claim 1, Since application expansion of the fluorochrome is carried out on this recombination field layer after formation of the layer which serves as a recombination field of an electron and a hole among electronic transporting beds, this fluorochrome is subsequently heated and you make it spread in the aforementioned recombination field layer Since this layer is previously formed independently on the occasion of formation of a recombination field layer, the formation material can be chosen without being restrained by the physical properties of a fluorochrome. Moreover, also about a fluorochrome, since you make it spread in this layer after the recombination field stratification, arbitrary things can be chosen, without being restrained by the physical properties of the formation material of a recombination field layer.

[0020] Since two or more sorts of fluorochromes which present the different luminescent color as the aforementioned fluorochrome are used according to the manufacture method of electroluminescence devices a claim 2 and given in three, manufacture of the electroluminescence devices which emit light in two or more colors according to the luminescent color of a fluorochrome is attained.

[0021] In electroluminescence devices according to claim 4, since the layer used as the recombination field of an electron and a hole is made into the luminous layer a fluorochrome is made to come to spread, on the occasion of formation of this luminous layer, pattern processing of lithography, screen-stencil, etc. becomes unnecessary.

[0022] In electroluminescence devices according to claim 5, it is made to be spread by the field to which two or more sorts of fluorochromes which a luminous layer presents the different luminescent color became independent, respectively, and is formed, and since it comes to arrange the field which these-became independent corresponding to each intersection position of the aforementioned matrix electrode, respectively, the display in two or more colors is attained by the drive of a matrix electrode. In electroluminescence devices according to claim 6, the layer used as a recombination field, i.e., a luminous layer, is made into macromolecule gel, and diffusion of a fluorochrome becomes easy in macromolecule gel. Moreover, in macromolecule gel, it becomes diffusion of material other than a fluorochrome is also easy, and easy [ introduction of the dopant aiming at improvement in charge transportability, reduction of a hole or an electron-injection obstruction, etc. ]. In electroluminescence devices according to claim 7, the layer used as a recombination field, i.e., a luminous layer, is used as porosity silicon, and it is possible in a porosity silicon film making thickness and electronic physical properties uniform on the occasion of the formation, and equalization of the brightness in electroluminescence devices can be attained.

[0023]

[Example] Hereafter, this invention is explained in detail.

[0024] Drawing 1 and drawing 2 are drawings showing one example at the time of applying the electroluminescence devices according to claim 5 in this invention to the organic EL element for a color matrix display, and a sign 10 is an organic EL element in these drawings.

[0025] This organic EL element 10 forms transparent-electrode 12 -- which consists of ITO etc. in the shape of a stripe on the transparent substrate 11, and is these transparent electrodes 12. -- Luminous layer 13 -- is formed in the shape of a dot upwards, the electronic transporting bed 14 is formed on this luminous layer 13, and further, on it, stripe-like metal-electrode 15 -- is formed, as it intersects perpendicularly with aforementioned transparent-electrode 12 --. In addition, transparent-electrode 12 -- and metal-electrode 15 -- cross at right angles mutually, and the matrix electrode is constituted by carrying out formation arrangement.

[0026] Here, luminous layer 13 -- distributes a fluorochrome (distributed coloring matter) by diffusion in this dispersion-medium film so that for example, the poly N vinylcarbazole (PVCz) etc. may be used as the dispersion-medium film (dispersion-medium layer) which functions as a hole transporting bed and may be mentioned later. Moreover, in this example, as shown in drawing 1 and drawing 3 , it is heated out of a different color in a luminous layer 13, and the fluorochrome which specifically presents red, green, and three sorts of blue luminescent color, respectively distribution (diffusion), and red luminescence section 13a, green luminescence section 13b, and blue luminescence section 13c dissociate mutually by this, namely, it is formed independently into the luminous layer 13, respectively. In addition, as a fluorochrome, things, such as a coumarin system (green - yellow), a perylene system (red), an oxazole system (green - yellow), an oxazine system, a naphthalene system (blue), and a quinolone system, are chosen suitably, and are used.

[0027] Moreover, the electronic transporting bed 14 consists for example, of an aluminum oxy-complex etc. In addition, as above-mentioned luminous layer (hole transporting bed) 13 --, the electronic transporting bed 14, or an amphoteric transporting bed, conductive polymer compounds other than \*\*\*\* can also be used. For example, macromolecule gel can be used as above-mentioned luminous layer 13 --, i.e., the above-mentioned recombination



field layer. That is, macromolecule gel can be used as the dispersion-medium film (dispersion-medium layer) which functions as a hole transporting bed, and distribution of coloring matter becomes easy in this case as compared with the former (PVCz etc.). Furthermore, since it becomes easy [ the material diffusion of those other than coloring matter ] in this case, it becomes easy [ introduction of the dopant aiming at improvement in hole transportability, reduction of the hole pouring obstruction from an anode, etc. ]. Therefore, it becomes improvable [ a positive thin film property ]. Moreover, as above-mentioned luminous layer 13 --, i.e., the above-mentioned recombination field layer, porosity silicon can be used, for example. That is, let porosity silicon be the dispersion-medium layer which functions as a hole transporting bed. This porosity silicon layer porosity-izes the polysilicon contest film deposited by the CVD (chemical vapor deposition) method etc. for example, on the ITO electrode according to anodic oxidation. Since this porosity silicon layer can acquire thickness and electronic physical properties as a uniform film by the dry process, it can realize equalization of brightness.

[0028] Moreover, metal-electrode 15 -- becomes a back plate, and is formed from the high metal of the low of work functions, such as In, Mg, and calcium, i.e., electron-injection nature. By forming metal-electrode 15 -- from such a metal, they are pouring of the carrier (a hole, electron) from each electrode (transparent-electrode 12 --, metal-electrode 15--), and a luminous layer 13. -- Reunion inside is performed efficiently and the electroluminescence devices 10 obtained as a result become the high thing of luminescent ability.

[0029] In addition, each luminescence sections 13a, 13b, and 13c in aforementioned luminous layer 13 -- were arranged corresponding to each intersection position of the matrix electrode which becomes aforementioned transparent-electrode 12 -- from metal-electrode 15 --, respectively.

[0030] The electron poured in from a metal electrode 15 if it is in such organic EL element 10 passes along the electronic transporting bed 14, and it is a luminous layer 13. -- Luminous layer 13 on which the hole which results inside and is poured in from a transparent electrode 12 on the other hand functions also as a hole transporting bed -- It results inside, and when an electron and a hole recombine within this luminous layer 13, light is emitted in the color according to the kind of fluorochrome.

[0031] Here, the electronic physical properties of a thin film material which may serve as the mechanism for the hole transporting bed turning into a luminous layer in this organic EL element 10, i.e., an electronic transporting bed, (ETL), and a hole transporting bed (HTL) [a luminous layer] are explained using drawing 4 . Drawing 4 is the energy diagram of the carrier expressed in the form of the workload when setting the absolute value of ionization potential and an electron affinity to  $I_p$  and  $E_a$ , respectively, and pulling apart the concept of a work function ( $W_f$ ), i.e., an electron, from restraint of the Coulomb force in each thin film layer in infinite distance. In addition, electronic potential becomes small inside an individual with more big  $W_f$ , and the potential of a hole becomes small inside an individual with more small  $W_f$  to this.

[0032] About an electron injection, although an energy barrier with the size between Cathode (metal electrode 15)  $W_f$  and ETL  $E_a$  exists, since this obstruction is fully small to external electric field, an electron injection is performed easily. And the electron poured in into ETL moves to an interface with HTL by external electric field. Moreover, since electronic potential tends to become small more, the electron transfer from ETL to HTL advances spontaneously rather.

[0033] On the other hand, although an energy barrier with the size between Anode (transparent electrode 12)  $W_f$  and HTL  $I_p$  exists, since this obstruction is also fully small to external electric field about hole pouring, hole pouring is performed easily. And it moves to an interface with ETL by external electric field in the hole poured in into HTL. Moreover, to external electric field, since the energy barrier between ETL  $I_p$  and HTL  $I_p$  is very large, as for pouring of the hole from HTL to ETL, it becomes difficulty.

[0034] For this reason, the hole poured in from the anode is confined in HTL, and an electron flows into HTL from ETL to this, therefore the reunion of a hole and an electron is produced in the ETL and HTL side of a HTL interface. although the energy of the exciton produced by reunion will change to the HTL itself at this time if HTL is the single matter -- more -- fluorescence wavelength -- long -- and -- or when the big coloring matter of a fluorescence yield lives together to this recombination part, energy changes are alternatively performed to the fluorochrome molecule, and a thin film makes luminescence resulting from the fluorescence of a fluorochrome molecule

[0035] In addition, although drawing 4 showed the example as which this layer functions as a luminous layer when a hole transporting bed (HTL) turns into a recombination field layer, therefore a fluorochrome is made to live together in this layer An electronic transporting bed is used as a recombination field layer depending on selection of the thin film material which forms an electronic transporting bed (ETL) and a hole transporting bed (HTL). Therefore, it is also possible to make this layer into a luminous layer, and it is also possible to prepare an amphoteric transporting bed between an electronic transporting bed (ETL) and a hole transporting bed (HTL) further, to use this layer as a

recombination field layer, and to make this amphoteric transporting bed into a luminous layer by this.

[0036] Next, the manufacture method of such an organic EL light emitting device 10 is explained.

[0037] First, the transparent substrate 11 which formed transparent-electrode films, such as ITO, beforehand by the vacuum deposition, the spatter, etc. is prepared, and as a transparent-electrode film is patternized in the shape of a stripe by etching etc. and shown in drawing 5 (a) and (b), transparent-electrode 12 -- is formed on the transparent substrate 11.

[0038] Next, about the material which forms hole transporting beds, such as the poly N vinylcarbazole (PVCz), as shown in drawing 6 (a) and (b), it is the aforementioned transparent electrode 12 by wet methods, such as a spin coat and a dipping coat, or the vacuum deposition. -- Membranes are formed upwards and the hole transporting bed 16 is formed. It is the metal electrode 15 shown in drawing 2 about membrane formation of the material which forms this hole transporting bed 16 here. -- It is [ inner ] a transparent electrode 12 each all the time three. -- One intersection each is made into one unit (pixel), and by forming membranes for every units of these, it carries out so that the whole may become dot-like. In addition, about drawing 5 (a), (b), drawing 6 (a), (b) and drawing 7 (a) that carries out a postscript, (b) - drawing 10 (a), and (b), the plan and sectional side elevation only about the aforementioned unit (pixel) are shown.

[0039] Next, the fluorochrome B which presents the fluorochrome G which presents the fluorochrome R which presents red luminescence on the hole transporting bed 16 formed by doing in this way as shown in drawing 7 (a) and (b), and green luminescence, and blue luminescence is mutually separated by screen printing or the ink-jet method, respectively, and application expansion is made and carried out.

[0040] Subsequently, by irradiating infrared radiation at the side which developed the aforementioned fluorochromes R, G, and B using the infrared lamp 17, and heating these fluorochromes R, G, and B and the hole transporting bed 16, as shown in drawing 8 (a) and (b) A luminous layer 13 is formed at the same time it forms red luminescence section 13a, green luminescence section 13b, and blue luminescence section 13c by making these fluorochromes R, G, and B diffuse in the hole transporting bed 16.

[0041] In addition, about heating diffusion of a fluorochrome, it is not from the side which developed this fluorochrome, and it may heat from the transparent substrate 11 side, and heaters, such as not infrared heating but a hot plate, may be used in that case, and you may heat by heat conduction. Thus, if it heats from the transparent substrate 11 side, the coloring matter loss to which the fluorochrome which used the expansion side of a fluorochrome since temperature became low from the transparent substrate 11 originated in sublimation when sublimability was high can be reduced.

[0042] Moreover, it may develop with-like [ solid-state ], and it may be made to dissolve in a proper solvent and you may make it develop by the shape of a solution about expansion of Fluorochromes R, G, and B.

[0043] Subsequently, the material which forms electronic transporting beds, such as an aluminum oxy-complex, is formed on a luminous layer 13 by the vacuum deposition etc., as shown in drawing 9 (a) and (b), and the electronic transporting bed 13 is formed.

[0044] Then, it intersects perpendicularly with transparent-electrode 12 --, and each red luminescence section 13a-- of a luminous layer 13, green luminescence section 13b--, and organic EL element 10 of blue luminescence section 13c-- that was made to correspond to each, formed metal-electrode 15 -- in right above [ of these ] by the spatter etc., and was shown in drawing 1 and drawing 2 are obtained.

[0045] Since Fluorochromes R, G, and B are developed, and this is heated further, it is spread in the hole transporting bed 16 and a luminous layer 13 is formed on it after forming previously the hole transporting bed 16 used as a recombination field layer, if it is in such a manufacture method The material which forms the hole transporting bed 16 can be chosen without being restrained by the physical properties of Fluorochromes R, G, and B. also about Fluorochromes R, G, and B Since you make it spread in this layer after hole transporting-bed (recombination field layer) 16 formation, arbitrary things can be chosen without receiving restrictions in the physical properties of the formation material of the hole transporting bed 16.

[0046] Moreover, the manufacturing cost was also reduction-ized, while the manufacture became easy, therefore the yield increased, since pattern processing of lithography, screen-stencil, etc. was not used for formation of a luminous layer 13, if it was in the organic EL element obtained by doing in this way.

[0047] Moreover, it has red luminescence section 13a which the luminous layer 13 was made to be spread by the field which became independent, respectively, and was formed, green luminescence section 13b, and blue luminescence section 13c, and each [ these ] luminescence section is [ -- Metal electrode 15 / -- (matrix electrode) A full color display is attained by drive. ] a transparent electrode 12, respectively. -- Metal electrode 15 -- Since it is arranged corresponding to the intersection position, they are these transparent electrodes 12.

[0048] In addition, although the aforementioned example explained by the case where heated these fluorochromes R, G, and B simultaneously, and they are made to diffuse after carrying out application expansion of the fluorochromes R, G, and B, respectively, this invention is not restricted to this method. For example, after dried this, having carried out application expansion of the fluorochrome G subsequently, drying this, carrying out [ having carried out application expansion of the fluorochrome R, ] application expansion of the fluorochrome B after that and drying this, you may diffuse each fluorochrome of RGB in a recombination field layer simultaneously by heating mentioned above.

Moreover, you may make the process of application expansion and heating diffusion repeat for every fluorochrome, as application expansion of the fluorochrome R is carried out, carry out heating diffusion of this, subsequently carry out application expansion in Fluorochrome G, heating diffusion is carried out in this, application expansion is carried out in Fluorochrome B after that and this was said as carrying out heating diffusion.

[0049] Moreover, although each luminescence section was formed in the luminous layer 13 using three sorts of things which emit light in red, green, and blue as a fluorochrome, only any one sort or two sorts of fluorochromes may be used, and the fluorochrome which emits light in colors other than the further aforementioned color may be used.

Moreover, although the luminous layer 13 was formed in the shape of a dot in the aforementioned example, each luminescence sections 13a, 13b, and 13c may be formed in the shape of a stripe, or the luminous layer 13 whole may be formed in the shape of [ two or more ] a stripe.

[0050] Furthermore, although it diffused the fluorochrome in this hole transporting bed as the hole transporting bed 16 became a recombination field, and it considered as the luminous layer 13 in the aforementioned example An electronic transporting bed is used as a recombination field layer depending on selection of the thin film material which forms an electronic transporting bed and a hole transporting bed as mentioned above. Therefore, this layer can also be made into a luminous layer, an amphoteric transporting bed can be further prepared between an electronic transporting bed and a hole transporting bed, and this layer can be used as a recombination field layer, and, thereby, also let this amphoteric transporting bed be a luminous layer.

[0051]

[Effect of the Invention] As explained above, the manufacture method of the electroluminescence devices according to claim 1 in this invention Application expansion of the fluorochrome is carried out on this recombination field layer after formation of a recombination field layer and the becoming layer. Subsequently, since this fluorochrome is heated and you make it spread in the aforementioned recombination field layer, it can choose on the occasion of formation of a recombination field layer, without the physical properties of a fluorochrome restraining the formation material by forming this layer independently previously. Moreover, also about a fluorochrome, since you make it spread in this layer after recombination field layer formation, arbitrary things can be chosen, without being restrained by the physical properties of the formation material of a recombination field layer. Therefore, when the flexibility on material selection increases, the manufacture condition is eased and, thereby, productivity can be raised.

[0052] Since the manufacture method of electroluminescence devices a claim 2 and given in three uses two or more sorts of fluorochromes which present the different luminescent color as the aforementioned fluorochrome, it can manufacture the electroluminescence devices which emit light in two or more colors according to the luminescent color of a fluorochrome.

[0053] The manufacturing cost was also reduction-ized, while the manufacture became easy, therefore the yield increased, since electroluminescence devices according to claim 4 were made into the luminous layer a fluorochrome is made to come to spread the layer used as the recombination field of an electron and a hole, and pattern processing of lithography, screen-stencil, etc. became unnecessary on the occasion of formation of this luminous layer.

[0054] It is made to diffuse electroluminescence devices according to claim 5 by the field to which two or more sorts of fluorochromes which a luminous layer presents the different luminescent color became independent, respectively, and they are formed, and since the field which these-became independent is arranged corresponding to each intersection position of the aforementioned matrix electrode, respectively, they can perform the display in two or more colors by the drive of a matrix electrode.

[0055] Electroluminescence devices according to claim 6 can make distribution of a fluorochrome easy by having made the recombination field layer used as a luminous layer into macromolecule gel. Furthermore, macromolecule gel becomes easy [ introduction of the dopant aiming at improvement in hole transportability, reduction of the hole pouring obstruction from an anode, etc. ], since it becomes easy [ the material diffusion of those other than coloring matter ]. Therefore, it becomes improvable [ the positive thin film property by introduction of a dopant ].

[0056] The recombination field layer from which electroluminescence devices according to claim 7 serve as a luminous layer is able for a porosity silicon film to porosity-ize the polysilicon contest film deposited by CVD etc. for example, on the ITO electrode according to anodic oxidation by considering as porosity silicon, and to obtain as a film

with homogeneous thickness and electronic physical properties by the dry process. Therefore, equalization of brightness is realizable by using porosity silicon as a luminous layer.

---

[Translation done.]

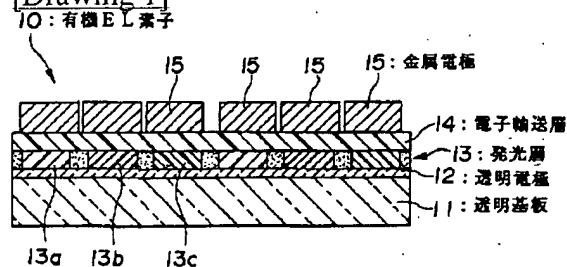
## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

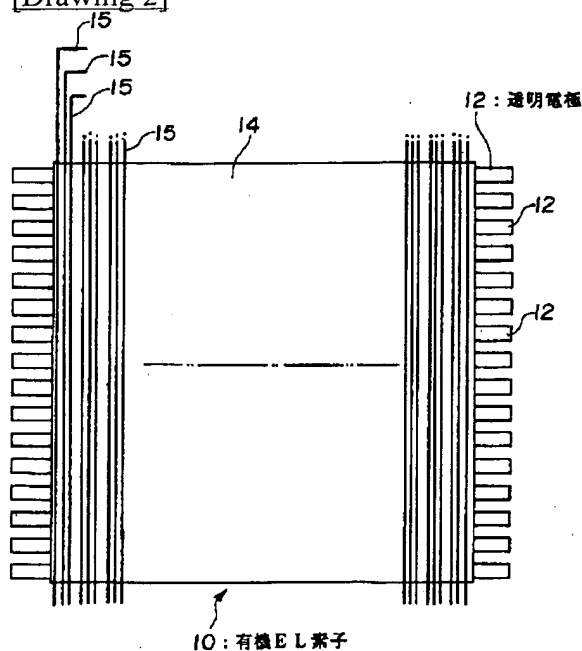
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DRAWINGS

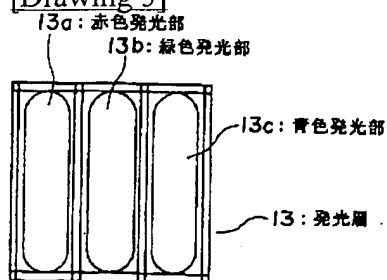
[Drawing 1]



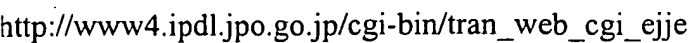
[Drawing 2]



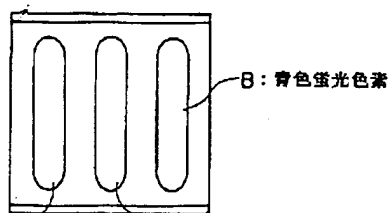
[Drawing 3]



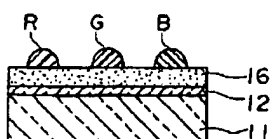
[Drawing 4]



(a)

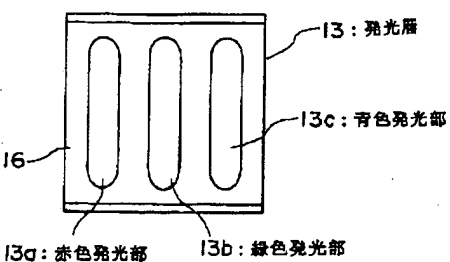


(b)

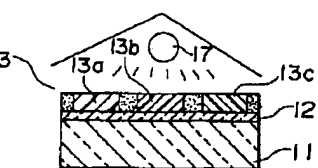


[Drawing 8]

(a)

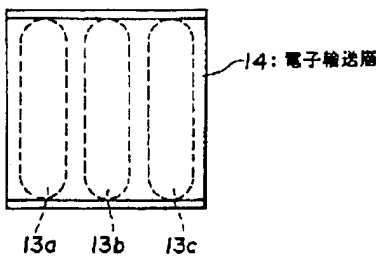


(b)



[Drawing 9]

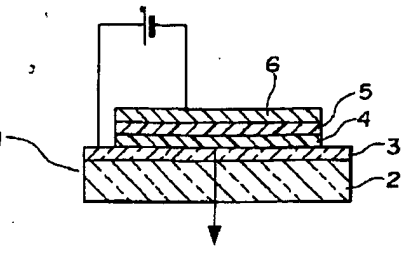
(a)



(b)



[Drawing 10]



[Translation done.]